

Rec'd PCT 18 MAR 2005

PCT/JP 03/12103

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

22.09.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2 0 0 3 年 4 月 2 5 日

REC'D 06 NOV 2003

WIPO PCT

出 願 番 号
Application Number: 特 願 2 0 0 3 - 1 2 2 7 8 5
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 3 - 1 2 2 7 8 5]

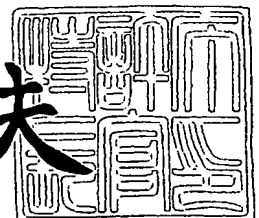
出 願 人
Applicant(s): 加 川 清 二

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 3 年 1 0 月 2 4 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 KAGAWA-027

【提出日】 平成15年 4月25日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 B29C 55/28
B29C 55/14
B29C 55/16
B29C 47/88

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県越谷市赤山町 1 丁目 2 5 2 番地 1 ハイホーム越谷 3 0 4

【氏名】 加川 清二

【特許出願人】

【識別番号】 391009408

【氏名又は名称】 加川 清二

【代理人】

【識別番号】 100080012

【弁理士】

【氏名又は名称】 高石 橋馬

【電話番号】 03(5228)6355

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 009324

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法及び製造装置

【特許請求の範囲】

【請求項1】 インフレーションダイから押し出した溶融ポリブチレンテレフタレート樹脂のチューブを空気の注入により膨張させる空冷インフレーション法によりポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する方法において、押出樹脂圧力を85～140 kg/cm² とし、かつ押出樹脂温度を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂の融点－15℃～前記融点－5℃とすることを特徴とする方法。

【請求項2】 請求項1に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記ポリブチレンテレフタレート樹脂の極限粘度は0.8～1.5であることを特徴とする方法。

【請求項3】 請求項1又は2に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、ダイリップの間隙は0.8～1.2 mmであり、ダイ径は120～250 mmであり、ブローアップ比は2.0～4.0であることを特徴とする方法。

【請求項4】 請求項1～3のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、

- (1) 前記インフレーションダイの付近に設けられた第一温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルのネック部を前記融点－40℃～前記融点－25℃に徐冷し、
- (2) 前記第一温風吹出装置の上方に設けられた第二温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルの膨張部を前記融点－70℃～前記融点－40℃に徐冷し、
- (3) 前記第二温風吹出装置の上方に設けられた第三温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルのフロストライン領域を前記融点－130℃～前記融点－90℃に徐冷し、
- (4) 前記フロストラインより上方のバブル領域の周囲に間隙をもって設けた隔壁により、前記バブル領域を外部雰囲気から遮断するとともに、前記第一～第三温風吹出装置から噴出した温風を前記バブル領域の外面に沿って吹き上げることを特徴とする方法。

【請求項5】 請求項4に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記隔壁に複数の温風排出口を設けるとともに、前記隔壁内に整流板を設けることにより、前記第一～第三温風吹出装置から噴出した温風を整流することを特徴とする方法。

【請求項6】 請求項4又は5に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記第二温風吹出装置から噴出した温風により、前記バブルの膨張部は非晶質状態に保持されながら徐冷されることを特徴とする方法。

【請求項7】 請求項4～6のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記隔壁は加熱手段を有し、もって前記バブル領域を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度乃至前記ガラス転移温度+65℃の温度に保持することを特徴とする方法。

【請求項8】 請求項4～7のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記バブル領域を円筒状ネットで包囲することにより、前記バブルの横揺れを防止することを特徴とする方法。

【請求項9】 請求項4～8のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記第一及び第二温風吹出装置から噴出する温風の温度は25～50℃であり、前記第三温風吹出装置から噴出する温風の温度は前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度乃至前記ガラス転移温度+65℃の温度であることを特徴とする方法。

【請求項10】 請求項1～9のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、得られた空冷インフレーションフィルムをさらに一軸又は二軸に冷延伸することを特徴とする方法。

【請求項11】 請求項10に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記冷延伸を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度乃至前記ガラス転移温度+60℃の温度で行うことを特徴とする方法。

【請求項12】 請求項10又は11に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、空冷インフレーション法によるチューブ状フィルムの形成及び前記一軸又は二軸の冷延伸を連続的に行うことを特徴とする方法。

【請求項13】 請求項10～12のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレート

フィルムの製造方法において、得られたチューブ状フィルムを二分割した後で一軸又は二軸に冷延伸することを特徴とする方法。

【請求項14】 請求項10～13のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、空冷インフレーション法によるチューブ状フィルムの形成、前記チューブ状フィルムの二分割、及び前記一軸又は二軸の冷延伸を連続的に行うことを特徴とする方法。

【請求項15】 請求項1～9のいずれかに記載の製造方法により得られたポリブチレンテレフタレートフィルムであって、結晶化度が35～40%であり、縦方向の熱収縮率が0.4%以下であり、幅方向の熱収縮率が0.4%以下であることを特徴とするポリブチレンテレフタレートフィルム。

【請求項16】 (a) 溶融ポリブチレンテレフタレート樹脂をチューブ状に押し出すインフレーションダイと、(b) 得られたポリブチレンテレフタレートチューブ内に空気を注入してバブルを形成する手段と、(c) 前記インフレーションダイの付近に設けられ、前記バブルのネック部を徐冷する第一温風吹出装置と、(d) 前記第一温風吹出装置の上方に設けられ、前記バブルの膨張部を徐冷する第二温風吹出装置と、(e) 前記第二温風吹出装置の上方に設けられ、前記バブルのフロストライン領域を徐冷する第三温風吹出装置と、(f) 前記第三温風吹出装置の上方で、かつ前記フロストラインより上方のバブル領域の周囲に設けられ、前記バブル領域を外部雰囲気から遮断するとともに、前記第一～第三温風吹出装置より噴出した温風を前記バブル領域の外面に沿って吹き上げるための隔壁とを具備し、前記隔壁は複数の温風排出口を有することを特徴とする装置。

【請求項17】 請求項16に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記隔壁内に整流板が設けられていることを特徴とする装置。

【請求項18】 請求項16又は17に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記隔壁の内側に加熱手段が設けられていることを特徴とする装置。

【請求項19】 請求項16～18のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記バブル領域を包囲するように前記隔壁の内側に設けられ、前記バブルの横揺れを防止する円筒状ネットを具備することを特徴

とする装置。

【請求項20】 請求項16～19のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記第二温風吹出装置から噴出した温風により前記バブルの膨張部が非晶質状態で徐冷されることを特徴とする装置。

【請求項21】 請求項16～20のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、得られた空冷インフレーションフィルムを冷延伸する手段をさらに有することを特徴とする装置。

【請求項22】 請求項21に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記インフレーションダイ、前記空気注入手段、前記第一温風吹出装置、前記第二温風吹出装置、前記第三温風吹出装置及び前記隔壁を有する空冷インフレーション手段と、前記冷延伸手段とが連続した構成であることを特徴とする装置。

【請求項23】 請求項22に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記空冷インフレーション手段により形成されたチューブ状フィルムを引き取るニップロールを具備するとともに、前記空冷インフレーション手段と前記冷延伸手段との間に、(1) 前記ニップロールにより引き取られたシート状の前記チューブ状フィルムの耳端位置を一定に制御するためのエッジ・ポジション制御装置と、(2) 前記耳端位置が一定に制御された前記チューブ状フィルムを二分割するための切断手段とをさらに有し、もって前記空冷インフレーション手段と、前記エッジ・ポジション制御装置と、前記切断手段と、前記冷延伸手段とがこの順に連続した構成であることを特徴とする装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、薄膜でありながら膜厚の均一性、熱収縮率及び機械的強度に優れたポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法及び製造装置に関する。

【0002】

【従来の技術】

ポリブチレンテレフタレート (PBT) 樹脂は、機械的強度、耐熱性、耐薬品性

、耐衝撃性、電氣的性質等に優れているため、従来からエンジニアリング用プラスチックとして注目され、自動車部品、電気・電子部品等の射出品として使用されてきた。しかしポリブチレンテレフタレート樹脂には、(イ) 結晶化速度が速いため、例えば結晶化した後に縦方向に延伸すると、その後横方向への延伸ができず、(ロ) 溶融張力が低いため、急速な延伸ができず、(ハ) ガラス転移温度が常温に近い場合フィルム皺が発生しやすいといった問題がある。そのため、ポリブチレンテレフタレート樹脂を厚さ10～30 μ m程度の包装用フィルムに成形するのは極めて困難である。

【0003】

一般的に樹脂フィルムの製造法にはTダイ法とインフレーション成形法とがあるが、Tダイ法に比較してインフレーション成形法は生産性が高くかつ経済的であり、薄いフィルムの製造に適している。しかしインフレーション成形法で製造したポリブチレンテレフタレートフィルムには、膜厚ムラが多く、熱収縮率が大きいといった問題がある。

【0004】

このような状況下で、特公平7-33048号（特許文献1）は、固有粘度が1.0以上のポリブチレンテレフタレート樹脂を融点（℃）＜押出樹脂温度（℃）＜融点－26＋53×固有粘度（℃）の条件下でインフレーション成形することにより、フィルム化する方法を提案した。

【0005】

一方Tダイ法によりポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する場合、得られる未延伸フィルムの物性改善、薄膜化等のために、未延伸フィルムに対して一般的に二軸延伸を施す。このようなPBTの二軸延伸フィルムを製造する方法として、特開昭49-80178号（特許文献2）には所定の温度で縦横方向に未延伸フィルムを同時二軸延伸する方法が提案されており、また特公昭51-40904号（特許文献3）及び特開昭51-146572号（特許文献4）には所定の温度と速度で未延伸フィルムを逐次二軸延伸する方法が提案されている。

【0006】

【特許文献1】

特公平7-33048号公報

【特許文献2】

特開昭49-80178号公報

【特許文献3】

特公昭51-40904号公報

【特許文献4】

特開昭51-146572号公報

【0007】

【発明が解決しようとする課題】

しかし特許文献1の方法には生産性が不十分という問題があった。また特許文献2～4の方法は、溶融ポリブチレンテレフタレート樹脂を急冷することにより作製した未延伸フィルムを二軸延伸するために、ポリブチレンテレフタレート樹脂の加工性が悪く、得られるフィルムの熱収縮率が大きかった。そのためフィルムの二次加工時に収縮し易いという問題があった。ポリブチレンテレフタレートフィルムの二軸延伸を容易にするために、他の樹脂フィルムと積層する方法、ポリエチレン、ポリプロピレン等の相溶性の良い樹脂をブレンドする方法等が提案されているが、包装フィルムとして最適な10～30 μ m程度の膜厚まで薄膜化するのは困難であった。

【0008】

従って、本発明の目的は、薄膜でありながら膜厚の均一性、熱収縮率及び機械的強度に優れたポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する方法及び製造装置を提供することである。

【0009】

【課題を解決するための手段】

上記目的に鑑み鋭意研究の結果、本発明者は、ポリブチレンテレフタレート樹脂を空冷インフレーション成形法によりフィルム化するポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、押出樹脂温度をポリブチレンテレフタレート樹脂の融点-15℃～前記融点-5℃とすることにより、薄膜でありながら膜厚の均一性、熱収縮率及び機械的強度に優れたポリブチレンテレフタレートフィルム

を製造できることを見出し、本発明に想到した。

【0010】

すなわち、本発明のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法は、インフレーションダイから押し出した溶融ポリブチレンテレフタレート樹脂のチューブを空気の注入により膨張させる空冷インフレーション法によりポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する方法において、押出樹脂圧力を $85\sim 140\text{ kg/cm}^2$ とし、かつ押出樹脂温度を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂の融点 -15°C ～前記融点 -5°C とすることを特徴とする。

【0011】

前記ポリブチレンテレフタレート樹脂の極限粘度は $0.8\sim 1.5$ であるのが好ましい。ダイリップの間隙は $0.8\sim 1.2\text{ mm}$ であるのが好ましく、ダイ径は $120\sim 250\text{ mm}$ であるのが好ましい。ブローアップ比は $2.0\sim 4.0$ であるのが好ましい。ブローアップ比を $2.0\sim 4.0$ とすることによりバブルを縦方向及び横方向に同時にバランス良く延伸することができる。

【0012】

本発明のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、(1) 前記インフレーションダイの付近に設けられた第一温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルのネック部を前記融点 -40°C ～前記融点 -25°C に徐冷し、(2) 前記第一温風吹出装置の上方に設けられた第二温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルの膨張部を前記融点 -70°C ～前記融点 -40°C に徐冷し、(3) 前記第二温風吹出装置の上方に設けられた第三温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルのフロストライン領域を前記融点 -130°C ～前記融点 -90°C に徐冷し、(4) 前記フロストラインより上方のバブル領域の周囲に間隙をもって設けた隔壁により、前記バブル領域を外部雰囲気から遮断するとともに、前記第一～第三温風吹出装置から噴出した温風を前記バブル領域の外面に沿って吹き上げるのが好ましい。

【0013】

前記隔壁に複数の温風排出口を設けるとともに、前記隔壁内に整流板を設けるのが好ましい。これにより、前記第一～第三温風吹出装置から噴出した温風を整

流することができる。前記第二温風吹出装置から噴出した温風により、前記バブルの膨張部は非晶質状態に保持されながら徐冷される。前記隔壁は加熱手段を有するのが好ましい。これにより前記バブル領域を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度乃至前記ガラス転移温度+65℃の温度に保持することができる。前記バブル領域を円筒状ネットで包囲するのが好ましく、これにより前記バブルの横揺れを防止することができる。前記第一及び第二温風吹出装置から噴出させる温風の温度は25～50℃であるのが好ましい。前記第三温風吹出装置から噴出させる温風の温度は前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度乃至前記ガラス転移温度+65℃の温度であるのが好ましい。

【0014】

得られた空冷インフレーションフィルムをさらに一軸又は二軸に冷延伸してもよい。これにより膜厚の均一性及び熱収縮率が一層向上する。前記冷延伸を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度乃至前記ガラス転移温度+60℃の温度で行うのが好ましい。空冷インフレーション法によるチューブ状フィルムの形成及び前記一軸又は二軸の冷延伸を連続的に行うのが好ましい。得られたチューブ状フィルムを二分割した後で一軸又は二軸に冷延伸するのが好ましい。空冷インフレーション法によるチューブ状フィルムの形成、前記チューブ状フィルムの二分割、及び前記一軸又は二軸の冷延伸を連続的に行うのが好ましい。

【0015】

本発明の空冷インフレーション法により得られたフィルムは、結晶化度が35～40%であり、縦方向の熱収縮率が0.4%以下であり、幅方向の熱収縮率が0.4%以下である。

【0016】

本発明のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置は、(a) 熔融ポリブチレンテレフタレート樹脂をチューブ状に押し出すインフレーションダイと、(b) 得られたポリブチレンテレフタレートチューブ内に空気を注入してバブルを形成する手段と、(c) 前記インフレーションダイの付近に設けられ、前記バブルのネック部を徐冷する第一温風吹出装置と、(d) 前記第一温風吹出装置の上方に設けられ、前記バブルの膨張部を徐冷する第二温風吹出装置と、(e) 前記第二温風

吹出装置の上方に設けられ、前記バブルのフロストライン領域を徐冷する第三温風吹出装置と、(f) 前記第三温風吹出装置の上方で、かつ前記フロストラインより上方のバブル領域の周囲に設けられ、前記バブル領域を外部雰囲気から遮断するとともに、前記第一～第三温風吹出装置より噴出した温風を前記バブル領域の外面に沿って吹き上げるための隔壁とを具備し、前記隔壁は複数の温風排出口を有することを特徴とする。

【0017】

本発明の製造装置において、前記隔壁内に整流板が設けられているのが好ましい。前記バブル領域を包囲するように前記隔壁の内側に設けられ、前記バブルの横揺れを防止する円筒状ネットを具備するのが好ましい。前記第二温風吹出装置から噴出した温風により前記バブルの膨張部が非晶質状態で徐冷されるのが好ましい。得られた空冷インフレーションフィルムを冷延伸する手段をさらに有するのが好ましい。

【0018】

前記インフレーションダイ、前記空気注入手段、前記第一温風吹出装置、前記第二温風吹出装置、前記第三温風吹出装置及び前記隔壁を有する空冷インフレーション手段と、前記冷延伸手段とが連続した構成であるのが好ましい。前記空冷インフレーション手段により形成されたチューブ状フィルムを引き取るニップロールを具備するとともに、前記空冷インフレーション手段と前記冷延伸手段との間に、(1) 前記ニップロールにより引き取られたシート状の前記チューブ状フィルムの耳端位置を一定に制御するためのエッジ・ポジション制御装置と、(2) 前記耳端位置が一定に制御された前記チューブ状フィルムを二分割するための切断手段とをさらに有し、もって前記空冷インフレーション手段と、前記エッジ・ポジション制御装置と、前記切断手段と、前記冷延伸手段とがこの順に連続した構成であるのが好ましい。

【0019】

【発明の実施の形態】

[1] ポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法

(1) 空冷インフレーション成形法

図1は、本発明の空冷インフレーション成形法によるポリブチレンテレフタレート（PBT）フィルムの製造方法の工程を示す概略側面図である。押出機12に取り付けられたインフレーションダイ1から押出されたチューブ状フィルムは、空気注入管26から内部に空気が送り込まれて急激に所定の幅のフィルムに膨張し、引取り機ニップロール13に挟まれて引き取られ、巻き取りリール14により巻き取られる。インフレーションダイ1は環状のダイヘッド10及びウエルド部11を有する。チューブ状フィルムに注入するための空気を供給する空気注入手段に特に制限はなく、空気注入管26をブローに接続した構成の手段、空気注入管26を圧縮空気ポンペに接続した構成の手段等を挙げることができる。

【0020】

原料とするポリブチレンテレフタレート樹脂に特に制限はないが、1，4-ブタンジオールとテレフタル酸とを構成成分とするホモポリマーからなるのが好ましい。但し形状記憶能、熱収縮性等の物性を損なわない範囲で、1，4-ブタンジオール以外のジオール成分、又はテレフタル酸以外のカンボン酸成分を共重合成分として含んでいてもよい。そのようなジオール成分としては、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、1，4-シクロヘキサンメタノール等が挙げられる。ジカルボン酸成分としては、例えば、イソフタル酸、セバシン酸、アジピン酸、アゼライン酸、コハク酸等が挙げられる。好ましいポリブチレンテレフタレート樹脂の具体例としては、例えば東レ（株）から商品名「トレコン」として市販されているホモポリブチレンテレフタレート樹脂を挙げることができる。

【0021】

ポリブチレンテレフタレート樹脂には一般の熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂に添加される公知の添加剤、すなわち可塑剤、酸化防止剤や紫外線吸収剤等の安定剤、帯電防止剤、界面活性剤、染料や顔料等の着色剤、流動性の改善のための潤滑剤、結晶化促進剤（核剤）、無機充填剤等も要求性能に応じ適宜使用することが出来る。

【0022】

ポリブチレンテレフタレート樹脂はポリブチレンテレフタレートのみからなる

場合に限定されず、本発明の効果を阻害しない範囲で目的に応じて他の熱可塑性樹脂を含有しても良い。他の熱可塑性樹脂としてはポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリエチレンナフタレート (PEN) 等のポリエステル；ポリフェニレンサルファイド (PPS)；ポリアミド (PA)；ポリイミド (PI)；ポリアミドイミド (PAI)；ポリエーテルサルホン (PES)；ポリエーテルエーテルケトン (PEEK)；ポリカーボネート；ポリウレタン；フッ素樹脂；ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン；ポリ塩化ビニル；エラストマー等を挙げることができる。他の熱可塑性樹脂を含有する場合、その割合はポリブチレンテレフタレート樹脂全体を100質量%として、5～15 質量%であるのが好ましく、5～10 質量%であるのがより好ましい。従って、特に断りがない限り、本明細書において使用する用語「ポリブチレンテレフタレート樹脂」は、ポリブチレンテレフタレート単体、及びポリブチレンテレフタレート+他の熱可塑性樹脂の組成物の両方を含むものと理解すべきである。

【0023】

ポリブチレンテレフタレートフィルムを製造するには、まずポリブチレンテレフタレート樹脂及び所望の添加剤などの混練を行う。混練温度及び混練圧力を、後述する押出樹脂温度及び押出樹脂圧力が本発明の範囲となるように調整する。混練温度が必要以上に高くないように、一軸押出機のような押出機中で混練を行う場合、発熱しないようなスクリュウ構造を有するもの、又は適当な冷却装置を有するものを使用する。

【0024】

押出樹脂温度はポリブチレンテレフタレート樹脂の融点（以下特段の断りがない限り単に「融点」と呼ぶ） -15°C ～融点 -5°C とする。本明細書において、押出樹脂温度とは、押出機12の出口110とダイヘッド10の入口111とを結ぶウェルド部11における樹脂温度を意味する。但しウェルド部11の構造は図示のものに限られるものではない。押出樹脂温度を融点 -15°C ～融点 -5°C とすることにより、結晶化度が高く、かつ膜厚の均一性及び熱収縮率に優れたポリブチレンテレフタレートフィルムが得られる。押出樹脂温度は、融点 -10°C ～融点 -5°C とするのが好ましい。押出樹脂温度は、ウェルド部11の樹脂流路内に到達するように設け

た温度検出器112（熱電対等）により直接測定することができる。

【0025】

押出樹脂圧力は $85\sim 140\text{ kg/cm}^2$ とする。本明細書において、押出樹脂圧力とは、押出樹脂温度の場合と同じくウェルド部11における樹脂圧力を意味する。但し押出樹脂温度の場合と同じくウェルド部11の構造は図示のものに限られるものではない。押出樹脂圧力を $85\sim 140\text{ kg/cm}^2$ とすることにより、押出樹脂温度が融点 $-15^{\circ}\text{C}\sim$ 融点 -5°C であっても、バブルを形成するために十分な溶融粘度の樹脂を押し出すことができる。押出樹脂圧力は $95\sim 120\text{ kg/cm}^2$ とするのが好ましい。押出樹脂圧力は、押出機中のスクリーンバック120のメッシュを変えたり、環状オリフィスの間隙を変えたりすることにより調節することができる。押出樹脂圧力は、押出機出口110の近傍において、シリンダー内に到達するように設けた圧力検出器121により直接測定することができる。

【0026】

ダイヘッド10から押し出す樹脂温度は融点 $-10^{\circ}\text{C}\sim$ 融点 $+30^{\circ}\text{C}$ とするのが好ましく、融点 $-10^{\circ}\text{C}\sim$ 融点 $+10^{\circ}\text{C}$ とするのがより好ましく、融点 $-10^{\circ}\text{C}\sim$ 融点未満とするのが特に好ましい。ポリブチレンテレフタレート樹脂がホモポリマーの場合、ダイヘッド10から押し出す樹脂温度は、 $210\sim 250^{\circ}\text{C}$ とするのが好ましく、 $210\sim 230^{\circ}\text{C}$ とするのがより好ましく、 $210\sim 220^{\circ}\text{C}$ 未満とするのが特に好ましい。必要に応じてダイヘッド10を加熱する手段及び／又は冷却する手段を設ける。またダイヘッド10から押し出す樹脂圧力は $100\sim 120\text{ kg/cm}^2$ とするのが好ましい。ダイヘッド10のダイ径は $120\sim 250\text{ mm}$ であるのが好ましい。ダイリップの間隙は $0.8\sim 1.2\text{ mm}$ であるのが好ましい。

【0027】

インフレーションダイ1から押し出されたバブル3は、冷却装置により徐冷却されながらMD（縦方向）のみならずTD（横方向）にも延伸される。これを本発明の一実施例である図2に概略的に示す。

【0028】

図2において、バブル冷却装置は、インフレーションダイ1の付近に設けられた第一温風吹出装置20と、第一温風吹出装置20の上方に設けられた第二温風吹出

装置21と、第二温風吹出装置21の上方に設けられた第三温風吹出装置22と、第三温風吹出装置22の上方に設けられた隔壁23と、隔壁23の内側に設けられた加熱手段24と、隔壁23の内側（バブル3側）に設けられた円筒状ネット25とを有する。なお図2において、15はインフレーションダイ1の上方に設けられた断熱材を示し、16はガイドロールを示す。

【0029】

以上の構成の装置において、各温風吹出装置20～22及び隔壁23の配置は空冷インフレーション成形法により形成されるバブル3の温度コントロールにより決まるので、以下にバブル3の形状及び温度分布について説明する。

【0030】

ダイ1の環状オリフィス100より溶融したポリブチレンテレフタレート樹脂又はポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を押し出して、バブル3を形成するが、押し出された直後のバブル3は、溶融張力が低いために細径状となり、いわゆるネック部31を形成する。ネック部31において、バブル3は主としてMDに延伸される。次にバブル3は急激に膨張し、所定のバブル径となる。この膨張部32において、バブル3はMD及びTDに同時に延伸される。膨張部32のほぼ上方付近にフロストライン34があり、ここでポリブチレンテレフタレート樹脂は冷却固化状態となる。フロストライン34より上方のバブル領域33に設けられた隔壁23及び加熱手段24により、バブル3はさらに徐冷される。

【0031】

本発明の如く空冷インフレーション成形法によりポリブチレンテレフタレートフィルムを得るためには、バブル3の各部の温度を以下の通りコントロールする。

- (a) インフレーションダイ1より押し出し直後の温度は融点 -10°C ～融点 $+30^{\circ}\text{C}$ 。
- (b) ネック部31では融点 -40°C ～融点 -25°C に徐冷。
- (c) 膨張部32では融点 -70°C ～融点 -40°C に徐冷。
- (d) フロストライン34の領域では融点 -130°C ～融点 -90°C に徐冷。
- (e) バブル領域33ではポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度超～ガ

ラス転移温度+65℃以下に保持。

【0032】

上記条件(a)については、上述の通りであるが、条件(b)については、ネック部31で融点-40℃～融点-25℃に徐冷しないと、次の膨張部32でMD及びTDへの同時二軸延伸を十分に達成することができない。すなわちネック部31で融点-40℃～融点-25℃に徐冷することにより、膨張部32を融点-70℃～融点-40℃に徐冷／保持することができる（条件(c)）。PBT樹脂がホモポリマーの場合、ネック部31を180～195℃に徐冷するのが好ましい。膨張部32を融点-70℃～融点-40℃に保持しないと、膨張部32で適度な溶融張力を有さず、MDの延伸が主となってしまい、薄膜化できない。膨張部32を融点-70℃未満としてしまうと、結晶化が進行するので、非晶質状態を保持できない。PBT樹脂がホモポリマーの場合、膨張部32を150～180℃に徐冷するのが好ましい。

【0033】

このような温度条件を満たすためには、ブローアップ比（バブル径／ダイ径）を2.0～4.0にするのが好ましい。特にブローアップ比は2.0～2.8にするのが望ましい。

【0034】

条件(d)について、フロストライン34の領域でのバブル温度を融点-130℃～融点-90℃に徐冷することにより、バブル3のMD及びTDへの同時二軸延伸を十分に達成することができる。フロストライン34の領域においてバブル温度が融点-130℃より低いと、フィルム皺が発生する恐れがある。PBT樹脂がホモポリマーの場合、フロストライン34の領域を90～130℃に徐冷するのが好ましい。

【0035】

条件(e)については、フロストライン34の上方でバブル3をポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度超～ガラス転移温度+65℃以下に保持することにより、フィルム皺の発生を防止でき、かつ均一な薄いバブル3の形成を安定化することができる。好ましくはバブル領域33を90～110℃に保持する。隔壁23及び加熱手段24を設けずに、バブル領域33の温度をガラス転移温度以下に保つと、不均一な延伸が起こるおそれがあり、そのためバブル3全体が不安定となる。ポ

リブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度は、一般的に22～45℃である。本明細書において、ガラス転移温度とはJIS K7121に準じて測定したものである。

【0036】

本発明においては、図2に示すように、バブル領域33の外周を円筒状ネット25でさらに囲うのが好ましい。これによりバブル領域33の温度を一層安定化することができ、かつバブル3の横揺れを防止することができる。

【0037】

以上のようなバブル3の温度コントロールを行うために、第一温風吹出装置20、第二温風吹出装置21、第三温風吹出装置22、隔壁23、加熱手段24、及び円筒状ネット25の配置は以下の通りである。

(イ) 第一温風吹出装置20

インフレーションダイ1のすぐ近くに設け、ネック部31の温度が融点-40℃～融点-25℃に徐冷されるように、温風を噴出させる。係る温風の温度は25～50℃であるのが好ましい。

(ロ) 第二温風吹出装置21

膨張部32のすぐ下部に設け、膨張部32の温度が融点-70℃～融点-40℃に徐冷されるように、温風を噴出させる。係る温風の温度は25～50℃であるのが好ましい。

(ハ) 第三温風吹出装置22

フロストライン34のすぐ下部に設け、フロストライン34の領域の温度が融点-130℃～融点-90℃に徐冷されるように、温風を噴出させる。係る温風の温度は、ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度超～ガラス転移温度+65℃以下であるのが好ましい。

(ニ) 隔壁23及び加熱手段24

隔壁23は第三温風吹出装置22の上方の位置で、バブル領域33を包囲しかつ第一～第三温風吹出装置より噴出した温風がバブル領域33の外面に沿って吹き上がるように設ける。加熱手段24は隔壁23の内側に設ける。隔壁23及び加熱手段24を設けることにより、バブル領域33を外部雰囲気（気温・温度等）の影響から遮断し

、常にポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度超～ガラス転移温度＋65℃以下に保持することができる。

(ホ) 円筒状ネット25

隔壁23の内側で、バブル領域33を包囲するように設ける。

【0038】

以上の方法において、第一～第三温風吹出装置のそれぞれより噴出させるための温風を供給する手段に特に制限はなく、温度コントロール可能なブロー等を用いることができる。第一～第三温風吹出装置のそれぞれより噴出させる温風の流量は、ネック部31、膨張部32及びフロストライン34の領域でのバブル温度がそれぞれ上記の温度範囲となるように適宜調節する。安定した徐冷効果が得られないとバブル3が不安定となるので、温風の温度はできるだけ変化しないようにコントロールする。

【0039】

隔壁23の材質に特に制限はないが、隔壁23で包囲されたバブル領域33が観察できるようにアクリル樹脂であるのが好ましい。バブル領域33を四方から囲むことができれば隔壁23の形状に特に制限はなく、例えば円筒型構造のものや、直方体型構造のものが挙げられるが、円筒型構造であるのが好ましい。隔壁23の内側に設ける加熱手段24としては、例えば棒状やリボン状の電気ヒーターを用いることができる。棒状の電気ヒーターは、複数設けるのが好ましい。隔壁23の内面にアルミニウム箔を張り付け、熱放射を遮断できる構成としてもよい。必要に応じて隔壁23の下部（第三温風吹出装置22のすぐ上部）に、室温程度の冷風を吹き上げる手段を設けてもよい。これにより隔壁23内の温度調整が容易となるだけでなく、隔壁23内の空気流量調整も容易となる。

【0040】

図2に示すように、隔壁23の上部に温風排出口230を設けるのが好ましい。温風排出口230を設けることにより、第一～第三温風吹出装置から噴出した温風を整流することができる。このため温風によるバブル3の横揺れを防止することができる。温風排出口230は2個以上設けるのが好ましく、2～4個設けるのがより好ましい。図 に示す例では、隔壁23の側面231の上部に温風排出口230を設け

ているが、隔壁23の上面232に設けてもよい。但し温風排出口230の数及び口径は、隔壁23による保温性が損なわれない程度とする。

【0041】

図2に示すように、隔壁23の内側上部にリング状の整流板28を設けるのが好ましい。整流板28を設けることにより、第一～第三温風吹出装置から噴出した温風を整流する能力が向上し、バブル3の横揺れ防止性が一層向上する。図2に示すように、整流板28は円筒状ネット25の近傍から隔壁23の内側面近傍まで延在するのが好ましい。整流板28の構造に制限はなく、図2及び図3(a)に示すような一方向に並んだ板材により仕切られた構造のもの、図3(b)に示すような格子状に仕切られた構造のもの、多数の丸孔が設けられたパンチングプレート状のもの、ネット状のもの等が挙げられる。整流板28の開孔率は40～60%であるのが好ましい。整流板28を構成する材料に特に制限はなく、アルミニウム、合成樹脂等が挙げられる。整流板28の設置枚数にも特に制限はないが、通常は一枚設ければよい。

【0042】

円筒状ネット25を構成する繊維としては、シルク、綿等の天然繊維、ナイロン、ポリプロピレン、ポリエステル等のプラスチック繊維、ステンレススチール、銅、黄銅、ニッケル等の金属繊維等を用いることができる。円筒状ネット25としてネット状のものを用いる場合、その網目が5～20メッシュのものが好ましく、特に8～10メッシュのものが好ましい。

【0043】

本発明におけるポリブチレンテレフタレート樹脂の空冷インフレーション成形法による製膜は以上の要件を保持することにより可能であり、他の条件はインフレーション方式の一般的な条件が適用出来る。即ちクロスヘッドダイを用いて、上方又は下方にチューブ状溶融ポリブチレンテレフタレート樹脂を押出し、端をピンチロールで挟んでその中に空気を送り込んで所定のサイズに膨らませつつ連続的に巻き取り、この間ダイを回転又は反転して偏肉を防止する事も出来る。

【0044】

本発明の製造方法によれば、常にバブルの各部（押し出し直後、ネック部、膨

張部、フロストライン領域、バブル領域) がそれぞれ所望の温度に維持されるので、品質が常に均一である。さらに高速製膜が可能である。

【0045】

以上説明した空冷インフレーション成形により得られたポリブチレンテレフタレートフィルム（インフレーションPBTフィルム）を、ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度超～ガラス転移温度+60℃以下の温度で、さらに縦方向又は横方向に一軸冷延伸するか、又は縦方向及び横方向に逐次二軸冷延伸してもよい。これによりインフレーションPBTフィルムをさらに薄膜化でき、かつフィルムの膜厚の均一性及び透明性が向上する。好ましい冷延伸温度は55～65℃である。係る一軸冷延伸の延伸率は、縦方向又は横方向に2倍以上とするのが好ましく、2～6倍とするのがより好ましい。一軸冷延伸を行う場合は、縦方向に行うのが好ましい。係る逐次二軸冷延伸の延伸率は、面倍率で4倍以上とするのが好ましく、4～16倍とするのがより好ましい。

【0046】

一般的にポリブチレンテレフタレートフィルムを、ガラス転移温度+60℃超の温度で延伸すると、延伸方向に結晶が配向するので、配向方向における引張強度、弾性率、剛性等は大幅に向上する。しかし配向していない方向における強度が低下するので、ガラス転移温度+60℃超の温度で逐次二軸延伸を行うとフィルムが裂けるといった問題がある。これに対して、ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度超～ガラス転移温度+60℃以下の温度でポリブチレンテレフタレートフィルムを冷延伸した場合、ガラス転移温度+60℃超の温度で延伸した場合に比べて延伸方向への分子鎖の配向が少ない。このためガラス転移温度超～ガラス転移温度+60℃以下の温度で、インフレーションPBTフィルムに対して逐次二軸延伸を行ってもフィルムは裂けない。しかもガラス転移温度超～ガラス転移温度+60℃以下の温度で冷延伸することにより、一軸延伸を行った場合でも易裂性を生じない。またガラス転移温度超～ガラス転移温度+60℃以下の温度で冷延伸することにより、結晶が破壊されて微小な球晶が生成するので、フィルムの透明性が向上する。

【0047】

空冷インフレーション成形により得られたポリブチレンテレフタレートフィルムはチューブ状なので、一軸冷延伸をロール法で行う場合、又は逐次二軸冷延伸をロール法及びテンター法で行う場合には、チューブ状のポリブチレンテレフタレートフィルムを2つに切断した上で冷延伸を施す。チューブ状のインフレーションPBTフィルムを2つに切断するには、重ね折りされたシートの状態で、両端折部からシート面に対して水平にカッターで裂くか、又は横方向の両端耳部をスリッターで切り落とす。

【0048】

① 空冷インフレーション成形、② チューブ状インフレーションPBTフィルムの切断及び③ 冷延伸からなる工程は、空冷インフレーション成形後、2つに切断した各インフレーションPBTフィルムをそれぞれ一旦別の巻きフィルムとし、各巻きフィルムを順次巻き戻しながら冷延伸を行う逐次工程であってもよいが、上記①～③の工程を一連のライン上で連続的に行うインライン工程であるのが好ましい。

【0049】

図4(a)及び(b)は、空冷インフレーション成形により得られたポリブチレンテレフタレートフィルムを予め2つに切断し、一旦巻きフィルムとした後、縦方向及び横方向に逐次二軸冷延伸するための装置の例を示す概略側面図((a))及び概略平面図((b))である。

【0050】

巻き出されたインフレーションPBTフィルム2は、縦方向延伸部4において遅駆動ロール41と、速駆動ロール42の間の加熱ロール43で縦方向に延伸される。縦方向に延伸されたPBTフィルム2は、テンター5(横方向延伸部)に入りフィルム両端が保持されたまま加熱され、横方向に延伸され、熱処理される。横方向にも延伸されたPBTフィルム2は、冷却塔27で冷却空気が吹き付けられることにより急冷される。

【0051】

縦方向の延伸は、図5(a)に詳細に示すように、最前部の遅駆動ロール41と、最後部の速駆動ロール42の間に、回転自在である加熱ロール43を多数配置し、そ

これらの間にインフレーションPBTフィルム2を通し、遅駆動ロール41と速駆動ロール42との周速比を適宜設定することにより達成される。加熱ロール43の温度は、インフレーションPBTフィルムの温度が、そのガラス転移温度超～ガラス転移温度+60℃以下の温度となるように設定する。

【0052】

図5(b)及び(c)は、縦方向延伸部4の別の例を示す概略側面図である。図5(b)はニップロール式の例を示し、(c)はクローバーロール式の例を示す。いずれの方式でもインフレーションPBTフィルム2を複数の予備加熱用ロール43で予備加熱し、その後それぞれ加熱した遅駆動ロール41と速駆動ロール42との間で加熱延伸し、次いで複数の冷却用ロール44で冷却する。

【0053】

テンター5では、フィルムクリップローラー51を備えたチェーン（図示せず）がレール（図示せず）に沿ってエンドレスに循環する。テンター5は、予熱部、延伸部及び熱処理部の3部よりなる。縦方向に延伸されたPBTフィルム2は、予熱部、延伸部及び熱処理部のそれぞれにおいて、温風導入孔53から導入される温風が吹き付けられることにより加熱される。図4において、52はギヤを示し、54は温風をPBTフィルム2に均一に吹き付けるためのフードを示す。予熱部、延伸部及び熱処理部において噴出させる温風の温度は、各部を通るPBTフィルム2の温度が、それぞれガラス転移温度超～ガラス転移温度+60℃以下の温度に保持されるように設定する。冷却塔27による急冷は、延伸後のPBTフィルム2がガラス転移温度以下の温度となるようにする。

【0054】

インフレーションPBTフィルム2を縦方向又は横方向に一軸冷延伸するのみの場合は、以上説明した縦方向延伸部4又は横方向延伸部5のみでインフレーションPBTフィルム2を延伸した後、急冷すればよい。

【0055】

縦方向又は横方向への一軸冷延伸、並びに縦方向及び横方向への逐次二軸冷延伸は、図4に示すようなロール方式やテンター方式に限られるものではなく、チューブラー法等の方法も採用することができる。チューブラー法を採用する場合

は、① 空冷インフレーション成形及び② 冷延伸からなる工程は、一連のライン上で連続的に行うインライン工程であるのが好ましい。

【0056】

図6は、空冷インフレーション成形、チューブ状インフレーションPBTフィルムの切断及び冷延伸を一連のライン上で連続的に行うためのインライン装置の例を示す概略側面図である。引取り機ニップロール13に挟まれて引き取られたチューブ状フィルム2は、折り畳まれたシート状態で、カッター18により両端折部からシート面に対して水平に裂かれ、上下に分割された各インフレーションPBTフィルム2'、2'にはそれぞれ縦方向延伸部4、4において冷延伸が施される。図6に示すように、カッター18の前にエッジ・ポジション制御装置（EPC: Edge position control unit）8を設けるのが好ましい。これによりカッター18で切断する際に、インフレーションPBTフィルムの耳端位置（エッジ・ポジション）を常に一定位置に制御しておくことができるので、常にチューブ状インフレーションPBTフィルム2を均一に分割することができる。図6に示すエッジ・ポジション制御装置8は、二本のガイドロール81、81と、ガイドロール81、81を連結する連結軸82と、センサー83とを有し、センサー83からの指令によりガイドロール81、81の傾斜度が変化し、インフレーションPBTフィルム2の耳端位置（エッジ・ポジション）を常に一定に制御することができる。エッジ・ポジション制御装置としては、図示のものに限らず公知の他の制御機構のものも使用可能である。

【0057】

縦方向延伸部4、4では、加熱した遅駆動ロール45、45と、冷却した速駆動ロール46、46との間で、各インフレーションPBTフィルム2'、2'が冷延伸される。遅駆動ロール45、45の温度は、インフレーションPBTフィルムの温度が、そのガラス転移温度超～ガラス転移温度+60℃以下の温度となるように設定する。速駆動ロール46、46の温度は、インフレーションPBTフィルムのガラス転移温度以下、好ましくはガラス転移温度未満の温度に設定する。延伸率は、遅駆動ロール45、45と速駆動ロール46、46との周速比を適宜設定することにより調節すればよい。縦方向延伸部4、4の後に、図4に示すテンター5（横方向延伸部）を設

け、さらに横方向への冷延伸ができる構成としてもよい。

【0058】

図6に示すようにヒーター19を設け、冷延伸後のフィルムを熱処理するのが好ましい。ヒーター19に代えて、ロール加熱による熱処理でも構わない。熱処理は、ポリブチレンテレフタレートフィルムのガラス転移温度超～融点-50℃以下で行うのが好ましい。よってヒーター19の温度は、冷延伸後の各PBTフィルム2'の温度がガラス転移温度超～ガラス転移温度-50℃以下の温度に保持されるように設定する。冷延伸後の熱処理により、透明性、引張強度、熱収縮率及び膜厚の均一性が一層向上するとともに、皺の発生も抑制される。熱処理をガラス転移温度+60℃以上～融点-50℃以下で行うことにより、フィルムに直線的易裂性を付与することができる。フィルムに直線的易裂性を付与したくない場合は、熱処理をガラス転移温度超～ガラス転移温度+60℃未満で行えばよい。このように熱処理温度を変えることにより、フィルムの直線的易裂性及びそれに伴う引裂き強度を変化させることができる。

【0059】

図6に示すインライン装置を用いることにより、① 空冷インフレーション成形、② チューブ状インフレーションPBTフィルムの切断及び③ 冷延伸からなる一連の工程を効率化することができる。なお図6において、17はニップロールを示す。

【0060】

[2] ポリブチレンテレフタレートフィルム

上記[1]で述べた空冷インフレーション成形法により製造されたポリブチレンテレフタレートフィルムは、従来のインフレーション成形フィルムと比較して、結晶化度が高く、膜厚の均一性に優れかつ熱収縮率が低い。具体的には、平均膜厚8～30 μ mのフィルムの膜厚差は±1～3 μ mであり、熱収縮率はMD（縦方向）において0.4%以下であり、TD（幅方向）において0.4%以下である〔本明細書において、膜厚差とは、ポリブチレンテレフタレートフィルムの幅方向における中心部及び両端部の厚さをそれぞれ2点ずつ計6点測定し、そのうちの最大値と最小値との差を算出した値である。この値が小さいほうが良好な結果となることを

意味する。また熱収縮率とは、ポリブチレンテレフタレートフィルムを175℃で10分間暴露したときのMD及びTDの収縮率をそれぞれ測定した値である。]。このためムラの少ない印刷層や金属蒸着層を形成することができる。またヒートシール、印刷等の二次加工においてフィルム寸法の変化が少ない。

【0061】

上記[1]で述べた空冷インフレーション成形法により製造されたポリブチレンテレフタレートフィルムの熱収縮率が上述のように低いのは、バブルのネック部からフロストラインまでの領域を徐冷却し、縦(MD)横(TD)方向にほぼ均一に延伸するとともに、バブル領域をガラス転移温度超～ガラス転移温度+65℃以下に保持するので、生じたバブルに歪み(ストレス)が生じていないためと考えられる。

【0062】

特に空冷インフレーション成形の後に、上記[1]で述べた冷延伸を施した平均膜厚3～30 μm のフィルムの膜厚差は1～2 μm であり、冷延伸方向の熱収縮率は1%以下である。しかも何れの方角にも易裂性がなく、機械的強度に優れる。

【0063】

上記[1]で述べた空冷インフレーション成形法により製造されたポリブチレンテレフタレートフィルムは、従来のインフレーション成形フィルムと比較して、結晶化度が高い。具体的には、本発明のインフレーションPBTフィルムのX線法により測定された結晶化度は、35～40%である。このため上記[1]で述べた空冷インフレーション成形法により製造されたポリブチレンテレフタレートフィルムは、機械的強度に優れる。これに対して、融点以上の押出樹脂温度でインフレーション成形されたポリブチレンテレフタレートフィルムの結晶化度は通常30%以下である。なおキャスト法により成形されたポリブチレンテレフタレートの結晶化度は通常8～10%程度である。

【0064】

冷延伸を施したポリブチレンテレフタレートフィルムは、冷延伸方向に延在する多数の微細な線状皺を有する。すなわち冷延伸を施したポリブチレンテレフタレートフィルムの表面凹凸をAFM(原子間力顕微鏡)により測定すると、凹凸構

造の高低差は通常50 ~500 nmであり、凹凸構造の幅（線状皺の頂点同士の間隔）は通常500~20000 nmである。但し縦方向及び横方向に逐次二軸冷延伸を行った場合には、先に行った冷延伸による線状皺は消失し、後に行った冷延伸による線状皺のみがポリブチレンテレフタレートフィルムの表面に残る。よって逐次二軸冷延伸を行ってもポリブチレンテレフタレートフィルムが有する線状皺の方向は一方向のみである。

【0065】

冷延伸を施したポリブチレンテレフタレートフィルムは、上述のような線状皺を有することにより、光を回折／散乱させる作用を有する。例えば線状皺を有するポリブチレンテレフタレートフィルムを通して電球等の光源を見ると、線状皺の方向に対して直角方向に、光源を中心として光源とほぼ同じ幅の一本の光の筋が観察される。このため線状皺を有するポリブチレンテレフタレートフィルムと光源とを組合せることにより、装飾用のイルミネーションライト等を作製することができる。線状皺を有するポリブチレンテレフタレートフィルムを、線状皺の方向が互いに異なるように複数枚貼合わせた積層体は、光の回折／散乱効果が大い。そのような積層体は、透明フィルム上に電磁波シールド層を積層してなる透明電磁波シールドフィルムの透明フィルム層として有用である可能性がある。さらに線状皺を有するポリブチレンテレフタレートフィルムの積層体自体が電磁波シールドフィルムとして利用できる可能性がある。特に線状皺を有するポリブチレンテレフタレートフィルムを波板状に加工したものを複数枚貼合わせ、ハニカム構造体としたものは、光の回折／散乱効果が一層大きく、透明電磁波シールド性も高いと考えられる。そのようなハニカム構造体は防音材としても有用である可能性がある。

【0066】

(2) 形状記憶性

ポリブチレンテレフタレート樹脂は、例えば特願2002-303500号に記載されているように、形状記憶性を有する。ポリブチレンテレフタレートフィルムに特定の形状を記憶させるには、大きく分けて2つの方法がある。第1の方法では、ポリブチレンテレフタレートフィルムを、ガラス転移温度以下の温度 T_1 で一次形状

(I)に冷間加工後、ガラス転移温度を超える温度 T_2 で二次形状(I)に保持しながら急速に焼きなまし、次いでガラス転移温度以下の温度 T_3 まで急冷する。得られるフィルムは見かけ上二次形状(I)となるが、 T_1 以上の温度にするとほぼ一次形状(I)を回復する。ポリブチレンテレフタレートフィルムが、上記焼きなまし及び急冷工程で二次形状(I)に固定されても T_1 以上の温度下で一次形状(I)を回復する理由は定かではないが、例えば温度 T_1 の冷間加工で高分子鎖の絡み合いにひずみが保持され、このひずみの大部分は温度 T_2 での焼きなましを急速に行えば緩和されないで、 T_1 以上の温度下で一次形状(I)を回復するといったことが考えられる。

【0067】

第2の方法では、ポリブチレンテレフタレートフィルムを、ガラス転移温度超～融点未満の温度 T_5 で外力をかけて加熱変形加工後、外力をかけない状態でガラス転移温度以下の温度 T_6 にして一次形状(II)に固定し、さらにガラス転移温度超～温度 T_5 未満の温度 T_7 で外力をかけて加熱変形加工することにより二次形状(II)とし、二次形状(II)を保持したままガラス転移温度以下の温度 T_8 にして二次形状(II)に固定する。これに外力をかけない状態で温度 T_5 以上～融点未満の温度にするとほぼ一次形状(II)に回復する。ポリブチレンテレフタレートフィルムが、上記加熱変形加工及び冷却工程で二次形状(II)に固定されても、 T_5 以上の温度下で一次形状(II)を回復する理由は定かではないが、例えば温度 T_5 の加熱変形加工ではポリマーの結晶化が促進され、かつ結晶化部分の絡み合いを引き起こして固定点を生じており、温度 T_7 での加熱変形加工で温度 T_5 での変形の一部が緩和されて二次形状(II)となるが、大部分の分子鎖の配向は変化しないので、形状記憶は保持されるといったことが考えられる。ポリブチレンテレフタレート樹脂の結晶化度は通常20～30%程度である。またポリブチレンテレフタレート樹脂は、ガラス転移温度前後での弾性率変化が大きいことも形状記憶性に優れる要因の一つであると考えられる。

【0068】

上記[1]で述べた空冷インフレーション成形法により製造された本発明のポリブチレンテレフタレートフィルムは、上述のように膜厚の均一性に優れかつ熱収

縮率が低い。このため本発明のポリブチレンテレフタレートフィルムに対して上記第1又は第2の方法により一次形状(I)又は(II)を記憶させると、二次形状(I)又は(II)に固定されても、それぞれの一次形状(I)又は(II)をほぼ再現でき、優れた形状回復能(形状記憶性)を示す。

【0069】

以上の通り、図面を参照して本発明を説明したが、本発明はそれらに限定されず本発明の趣旨を変更しない限り種々の変更を加えることができる。

【0070】

【実施例】

本発明を以下の実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの例に限定されるものではない。

【0071】

実施例1

図1に示す装置を用いて空冷インフレーション成形法によりポリブチレンテレフタレートフィルムを作製した。ポリブチレンテレフタレート樹脂(商品名「トレコン1200S」、東レ(株)製、融点:220℃、極限粘度:1.2。)を一軸押出機(スクリュー径:50 mm、押出量:50 kg/hr)に投入し、210℃で溶融混練し、押出機中で溶融樹脂を調製した。続いて押出機から、押出機の先端に設置されたインフレーションダイのウェルド部に、210℃の押出樹脂温度及び120 kg/cm²の押出樹脂圧力で溶融樹脂を押し出し、さらにダイヘッド(ダイ径:150 mm、ダイリップの間隙:0.9 mm)から溶融樹脂のチューブを押し出した。押し出した溶融樹脂のチューブを3.6のブローアップ比で膨張させるとともに、(1)第一の温風吹出装置より温風(30℃)を噴出させることによりバブルのネック部を185℃に徐冷し、(2)第二温風吹出装置から温風(30℃)を噴出させることによりバブルの膨張部を160℃に徐冷し、(3)第三温風吹出装置から温風(50℃)を噴出させることによりフロストライン領域を125℃に徐冷し、(4)バブル領域を100℃に保持しながら20 m/分で引き取り、ポリブチレンテレフタレートフィルムを作製した。バブル領域を包囲する円筒状ネットはナイロン製のものとし、隔壁(アクリル樹脂製。円筒型構造。)は、その上部側面に温風排出口が2箇所設けられてお

り、内側に棒状ヒーターが設けられており、内部上部に開孔率60%の整流板が設けられたものを用いた。

【0072】

実施例 2

押出樹脂温度を205℃とし、押出樹脂圧力を130 kg/cm² とした以外は、実施例 1 と同様にしてポリブチレンテレフタレートフィルムを作製した。

【0073】

実施例 3

押出樹脂温度を215℃とし、押出樹脂圧力を110 kg/cm² とした以外は、実施例 1 と同様にしてポリブチレンテレフタレートフィルムを作製した。

【0074】

比較例 1

押出樹脂温度を230℃とし、押出樹脂圧力を90 kg/cm² とした以外は、実施例 1 と同様にしてポリブチレンテレフタレートフィルムを作製した。

【0075】

比較例 2

整流板を使用しなかった以外は、比較例 1 と同様にしてポリブチレンテレフタレートフィルムを作製した。

【0076】

実施例 1～3 及び比較例 1, 2 で得られたポリブチレンテレフタレートフィルムの物性を以下の方法で測定した。

【0077】

- ・平均膜厚：接触厚さ計により、シートの幅方向における中心部及び両端部の厚さをそれぞれ2点ずつ計6点の膜厚を測定した値を平均した。
- ・膜厚差：ポリブチレンテレフタレートフィルムの幅方向における中心部及び両端部の厚さをそれぞれ2点ずつ計6点測定し、そのうちの最大値と最小値との差を算出した。
- ・引張破断強度：幅10mm短冊状試験片の引張破断強度をASTM D882に準拠して測定。

・熱収縮率：ポリブチレンテレフタレートフィルムを175℃で10分間暴露したときのMD及びTDの収縮率をそれぞれ測定した。

・結晶化度：X線法により測定した。

【0078】

【表1】

製造条件		実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2
PBT樹脂 ⁽¹⁾	(グレード)	1200S	1200S	1200S	1200S	1200S
融点	(℃)	220	220	220	220	220
極限粘度	(IV値)	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2
ダイ径	(mm)	150	150	150	150	150
ダイリップの間隙	(mm)	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
ブローアップ比		3.6	3.6	3.6	3.6	3.6
押出樹脂温度	(℃)	210	205	215	230	235
押出樹脂圧力	(kg/cm ²)	120	130	110	90	90
バブルのネック部の温度	(℃)	185	185	185	185	185
バブルの膨張部の温度	(℃)	160	160	160	160	160
フロストライン領域の温度	(℃)	125	125	125	125	125
バブル領域の温度	(℃)	100	100	100	100	100
整流板		有り	有り	有り	有り	無し
引き取り速度	(m/分)	20	20	20	20	20
バブルの安定性		良好	良好	良好	良好	不良
物性						
平均膜厚	(μm)	20	22	18	20	—
膜厚差	(μm)	±3	±3	±3	±3	—
引張破断強度	MD(gf/25mm)	2700	2400	2100	1900	—
	TD(gf/25mm)	2500	2300	2000	1800	—
熱収縮率	MD(%)	0	0.2	0.2	0.5	—
	TD(%)	0.1	0.2	0.1	0.2	—
結晶化度	(%)	39.6	39.6	36.7	<30	—

注：(1) 東レ(株) 商品名「トレコン」

【0079】

表1に示すように、本発明の方法により製造した実施例1～3のポリブチレンテレフタレートフィルムは、結晶化度が高く、膜厚の均一性及び引張破断強度に優れ、かつ熱収縮率が低いことが分かる。実施例1～3では、ポリブチレンテレフタレートフィルムを作製中、バブルは横揺れせず、終始安定していた。これに対して比較例1は、押出樹脂温度をポリブチレンテレフタレート樹脂の融点以上とするので、結晶化度が低く、引張破断強度が劣っていた。比較例2は、整流板

を用いないので、フィルム作製中にバブルが横揺れを起こし、不安定であった。

【0080】

【発明の効果】

以上詳述したように、本発明の空冷インフレーション成形法によるポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法は、押出樹脂温度をポリブチレンテレフタレート樹脂の融点 -15°C ～融点 -5°C とするので、得られるフィルムは、その結晶化度が高く、薄膜でありながら膜厚の均一性、熱収縮率及び機械的強度に優れる。このため本発明のポリブチレンテレフタレートフィルムは、各種包装材、包装袋、即席食品用容器の蓋材等の用途に好適である。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の空冷インフレーション成形法によるポリブチレンテレフタレートフィルムを製造するための装置の一例を示す概略側面図である。

【図2】 バブルを徐冷却するための装置の一例を示す概略側面図である。

【図3】 (a)は整流板の一例を示す平面図であり、(b)は整流板の別の例を示す平面図である。

【図4】 空冷インフレーション成形法により製造したポリブチレンテレフタレートフィルムを逐次二軸冷延伸するための装置の一例を示す概略側面図（(a)）及び概略平面図（(b)）である

【図5】 空冷インフレーション成形法により製造したポリブチレンテレフタレートフィルムを縦方向に冷延伸するための装置の各種例を示す概略側面図である。

【図6】 空冷インフレーション成形法により製造したポリブチレンテレフタレートフィルムをインライン方式により冷延伸するための装置の一例を示す概略側面図である。

【符号の説明】

1・・・インフレーションダイ

10・・・ダイヘッド

100・・・環状オリフィス

11・・・ウェルド部

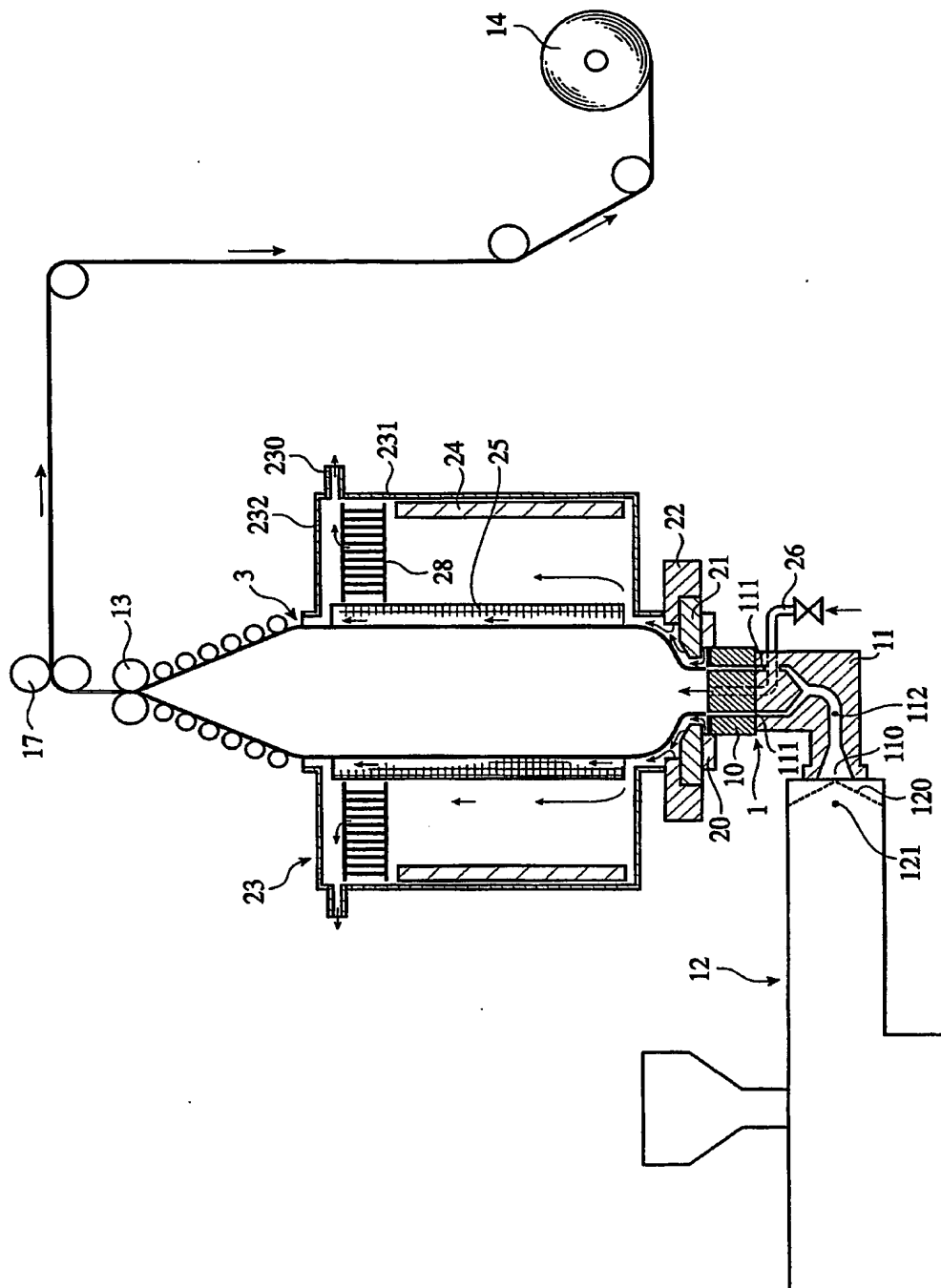
- 110 . . . 押出機出口
- 111 . . . ダイヘッド入口
- 112 . . . 温度検出器
- 12 . . . 押出機
 - 120 . . . スクリーンパック
 - 121 . . . 圧力検出器
- 13 . . . 引取り機ニップロール
- 14 . . . 巻き取りリール
- 15 . . . 断熱材
- 16 . . . ガイドロール
- 17 . . . ニップロール
- 18 . . . カッター
- 19 . . . ヒーター
- 2 , 2' . . . インフレーションPBTフィルム
- 20 . . . 第一温風吹出装置
- 21 . . . 第二温風吹出装置
- 22 . . . 第三温風吹出装置
- 23 . . . 隔壁
 - 230 . . . 温風排出口
 - 231 . . . 隔壁側面
 - 232 . . . 隔壁上面
- 24 . . . 加熱手段
- 25 . . . 円筒状ネット
- 26 . . . 空気注入管
- 27 . . . 冷却塔
- 28 . . . 整流板
- 3 . . . バブル
 - 31 . . . ネック部
 - 32 . . . 膨張部

- 33 . . . バブル領域
- 34 . . . フロストライン
- 4 . . . 縦方向延伸部
 - 41 . . . 遅駆動ロール
 - 42 . . . 速駆動ロール
 - 43 . . . 加熱ロール（予備加熱用ロール）
 - 44 . . . 冷却用ロール
 - 45 . . . 加熱遅駆動ロール
 - 46 . . . 冷却速駆動ロール
- 5 . . . テンター（横方向延伸部）
 - 51 . . . フィルムクリップローラー
 - 52 . . . ギヤ
 - 53 . . . 温風導入孔
 - 54 . . . フード
- 8 . . . エッジ・ポジション制御装置
 - 81 . . . ガイドロール
 - 82 . . . 連結軸
 - 83 . . . センサー

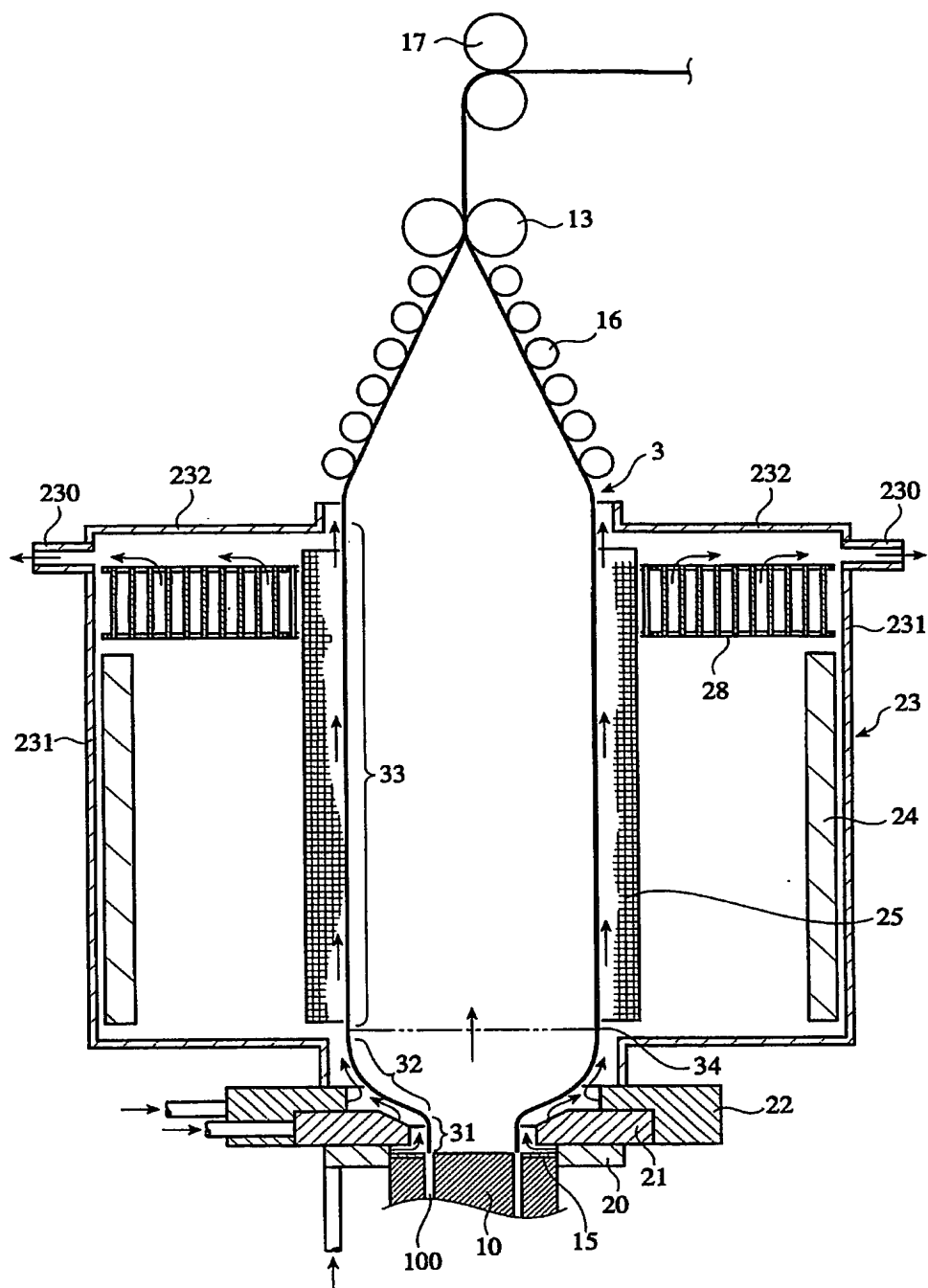
【書類名】

図面

【図 1】

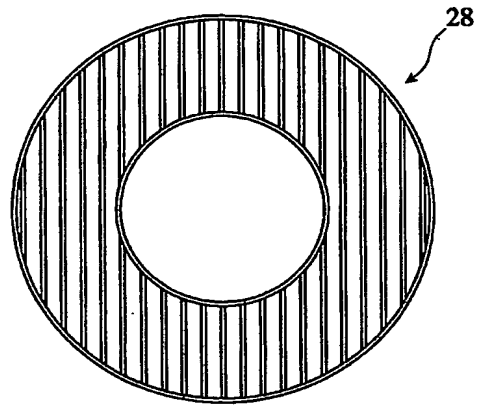


【図 2】

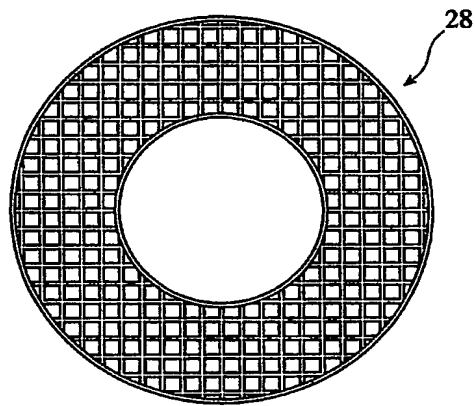


【図 3】

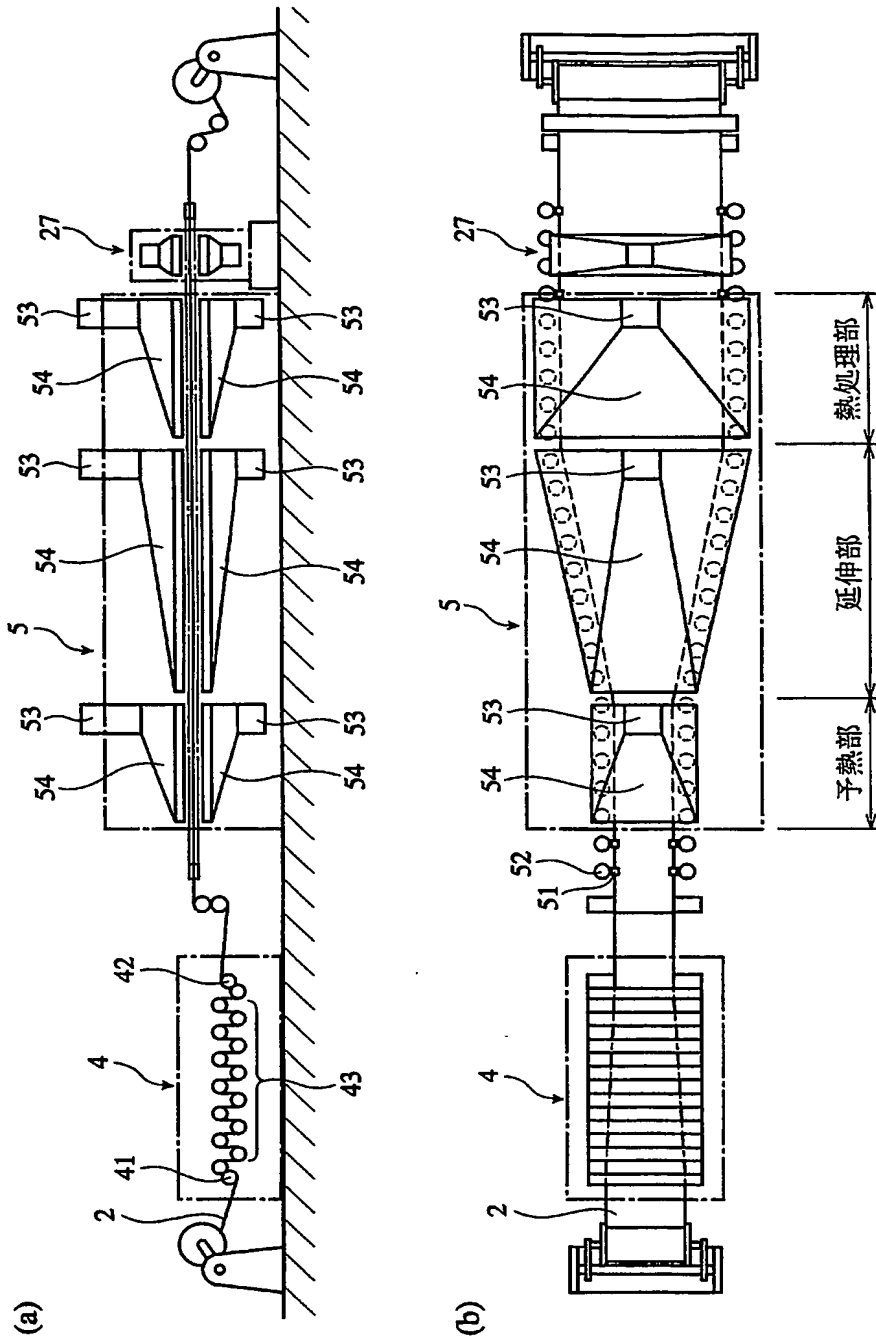
(a)



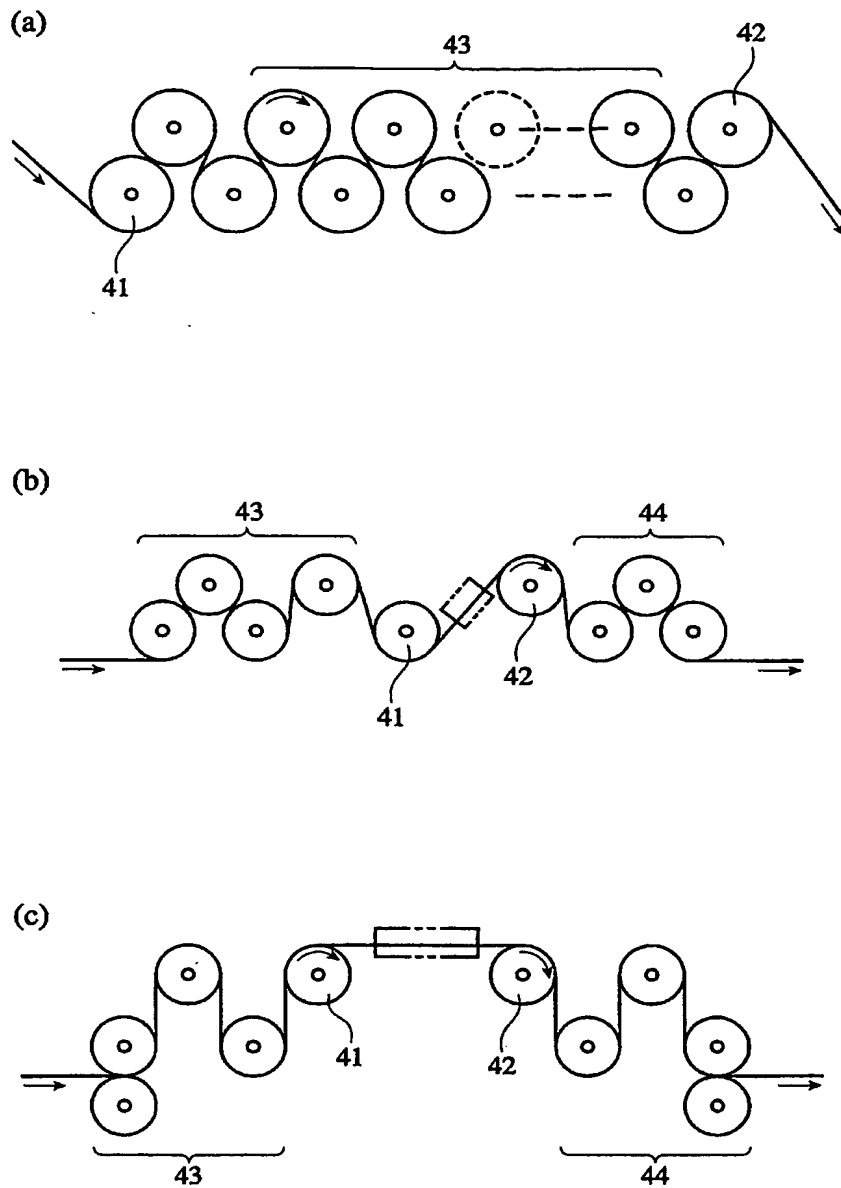
(b)



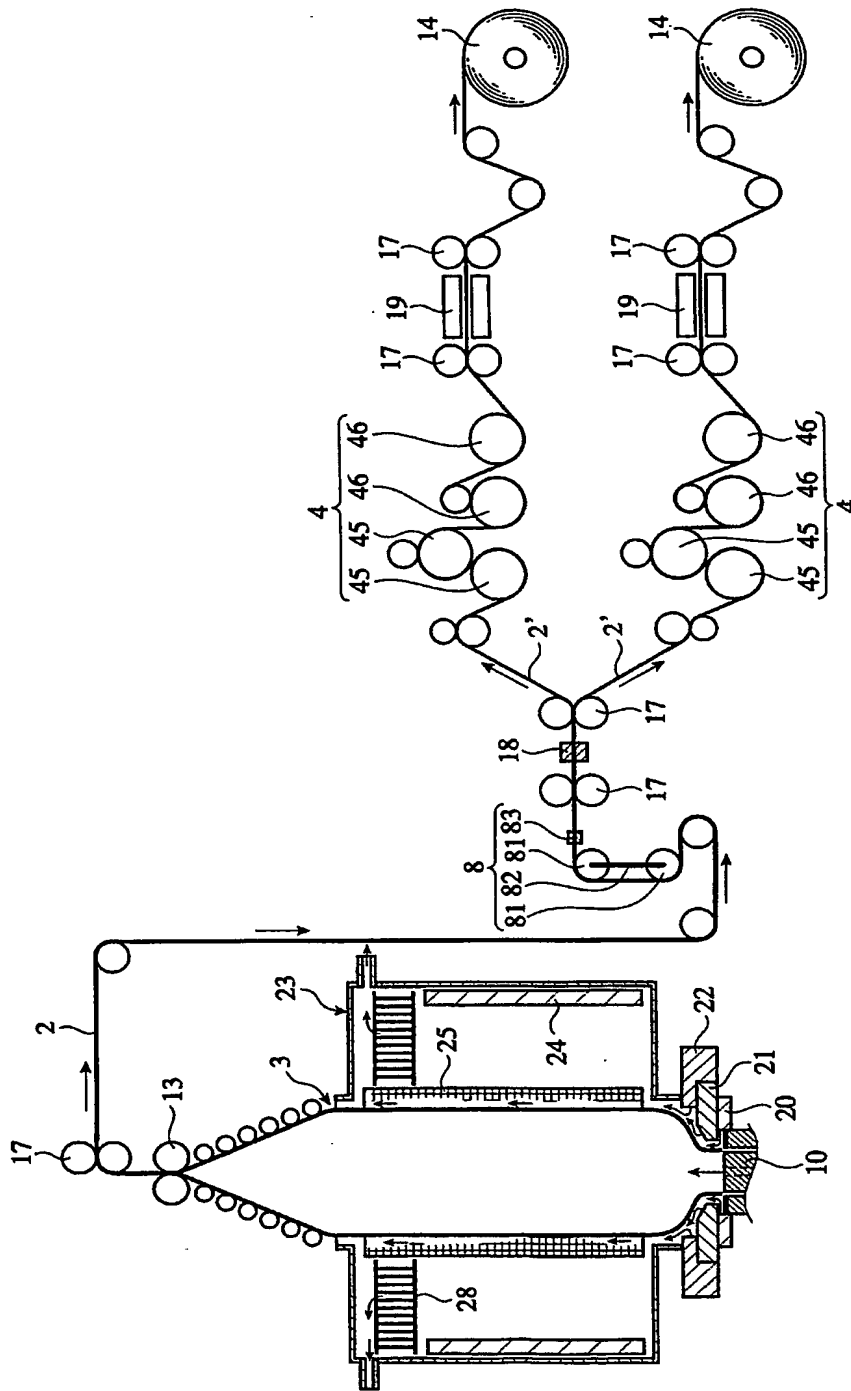
【図 4】



【図 5】



【図 6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 薄膜でありながら膜厚の均一性、熱収縮率及び機械的強度に優れたポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する方法及び製造装置を提供する。

【解決手段】 インフレーションダイから押し出した溶融ポリブチレンテレフタレート樹脂のチューブを空気の注入により膨張させる空冷インフレーション法によりポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する方法において、押出樹脂圧力を85～140 kg/cm² とし、かつ押出樹脂温度を上記ポリブチレンテレフタレート樹脂の融点－15℃～上記融点－5℃とする方法。

【選択図】 なし

特願 2003-122785

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[391009408]

1. 変更年月日

1991年 1月10日

[変更理由]

新規登録

住 所

埼玉県浦和市田島8丁目15番11-301

氏 名

加川 清二

2. 変更年月日

2002年 6月19日

[変更理由]

住所変更

住 所

埼玉県越谷市赤山町1丁目252番地1 ハイホーム越谷304

氏 名

加川 清二